

(19)



Europäisches Patentamt  
European Patent Office  
Office européen des brevets



(11) Veröffentlichungsnummer: **0 640 640 A1**

(12)

## EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(21) Anmeldenummer: 94112799.5

(51) Int. Cl.<sup>6</sup>: **C08G 65/46, C08J 3/12,  
C08J 3/14**

(22) Anmeldetag: 17.08.94

(30) Priorität: 27.08.93 DE 4328873

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:  
01.03.95 Patentblatt 95/09

(84) Benannte Vertragsstaaten:  
BE CH DE FR GB LI NL

(71) Anmelder: **BASF Aktiengesellschaft**  
Carl-Bosch-Strasse 38  
D-67063 Ludwigshafen (DE)

(72) Erfinder: **Heltz, Thomas, Dr.**  
Lessingstrasse 15  
D-67125 Dannstadt-Schauernheim (DE)  
Erfinder: **Müller, Frank, Dr.**  
Hermann-Hesse-Strasse 44  
D-67071 Ludwigshafen (DE)  
Erfinder: **Wolf, Peter, Dr.**  
Albrecht-Dürer-Ring 31a  
D-67227 Frankenthal (DE)

(54) **Polyarylenetheragglomerate.**

(57) Polyarylenetheragglomerate erhältlich aus Polyarylenetherflocken oder Polyarylenetherpulvern durch Einwirken von Scherkräften unter Druck bei Temperaturen zwischen der Glasübergangstemperatur  $T_g$  und dem Schmelzpunkt  $T_m$  des jeweiligen Polyarylenethers.

EP 0 640 640 A1

BEST AVAILABLE COPY

5

10

15

25

30

35

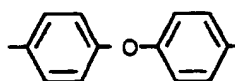
$$\text{-(O-Ar}^1\text{-(T-Ar}^2\text{)}_x\text{-O-(Ar}^3\text{-CO)}_z\text{-(Ar}^4\text{-Q)}_y\text{-Ar}^5\text{)-} \quad (\text{I})$$

40

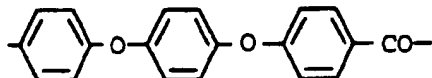
50

55

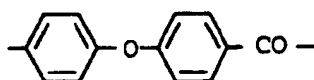
BNSDOCID: <EP\_ 0840640A1 | >

(II<sub>1</sub>)

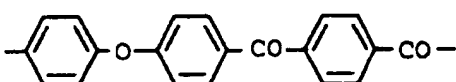
5

(II<sub>2</sub>)

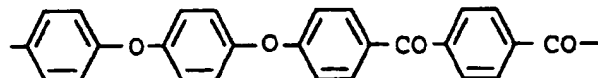
10

(II<sub>3</sub>)

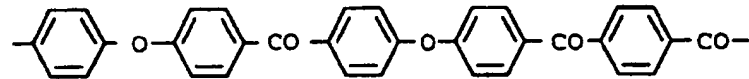
15

(II<sub>4</sub>)

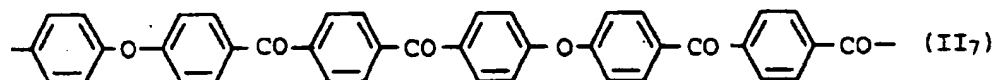
20

(II<sub>5</sub>)

25

(II<sub>6</sub>)

30

(II<sub>7</sub>)

allein oder in Verbindung mit anderen Einheiten enthalten.

35 Die Polyarylenether können auch statistische oder geordnete Copolymere wie alternierende oder Blockcopolymere sein. Es können auch Mischungen unterschiedlicher Polyarylenether verwendet werden. In der Regel weisen die Polyarylenether Schmelzvolumenindizes (MVI) von 5 bis 350 cm<sup>3</sup>/10 min (gemessen nach DIN 53 735, bei 400 °C und einer Belastung von 10 kg) auf. Bevorzugt werden Polyarylenether mit Schmelzvolumenindizes von 25 bis 250 cm<sup>3</sup>/10 min (gemessen nach DIN 53 735, bei 400 °C und einer Belastung von 10 kg). In der Regel betragen die reduzierten Viskositäten der Polyarylenether 30 bis 170 ml/g, bevorzugt 50 bis 150 ml/g, besonders bevorzugt 80 bis 140 ml/g. Die reduzierten Viskositäten werden je nach Löslichkeit der Polyarylenether entweder in 1 gew.-%iger N-Methylpyrrolidon-Lösung, in Mischungen aus Phenol und Dichlormethan oder in 96 %iger Schwefelsäure bei jeweils 20 °C bzw. 25 °C gemessen.

45 Die in Betracht kommenden Polyarylenether sind an sich bekannt und können nach an sich bekannten Methoden hergestellt werden. Polyarylenether entstehen z.B. durch Kondensation aromatischer Bishalogenverbindungen und den Alkalidoppelsalzen aromatischer Bisphenole. Sie können beispielsweise auch durch Selbstkondensation von Alkalisalzen aromatischer Halogenphenole in Gegenwart eines Katalysators hergestellt werden. Geeignete Verfahren werden unter anderem in der US-A-3 441 538, 4 108 837, der DE-A1-27 38 962 und der EP-A1-361 beschrieben. Polyarylenether, die Carbonylfunktionen enthalten, sind auch durch elektrophile (Friedel-Crafts-Polykondensation zugänglich, wie unter anderem in der WO 84/03892 beschrieben. Bei der elektrophilen Polykondensation werden zur Bildung der Carbonylbrücken entweder Dicarbonsäurechloride oder Phosgen mit Aromaten, welche zwei - durch elektrophile Substituenten austauschbare - Wasserstoffatome enthalten, umgesetzt, oder es wird ein aromatisches Carbonsäurechlorid, das sowohl eine 55 Säurechloridgruppe als auch ein substituierbares Wasserstoffatom enthält, mit sich selbst polykondensiert.

Zur Herstellung der erfindungsgemäßen Polyarylenetheragglomerate werden die Polyarylenetherflocken oder -pulver bei Temperaturen zwischen der Glasübergangstemperatur  $T_g$  und dem Schmelzpunkt  $T_m$  Scherkräften ausgesetzt. Durch die Reibung bauen sich dabei Drucke auf, die auf das Material einwirken.

Zusätzlich können die Drucke von außen verstärkt werden. Hierdurch agglomerieren die feinen Partikel.

Die Herstellung der erfindungsgemäßen Polyarylenetheragglomerate kann prinzipiell mittels verschiedener Techniken ausgeführt werden, solange die Scherkräfte und der während der Verarbeitung entstehende oder zusätzlich von außen aufgebraachte Druck im angegebenen Temperaturbereich die Agglomeration der Polyarylenetherflocken oder -pulvern gewährleisten. Bevorzugt wird während der Agglomeration der Polyarylenetherflocken kein zusätzlicher Druck von außen ausgeübt. In Betracht kommen Vorrichtungen, die eine Dosiereinheit, eine Einheit aufweisen, in der die Verdichtung vorgenommen werden kann und eine Abnahmeeinheit enthalten. Das Verfahren kann sowohl kontinuierlich als auch diskontinuierlich sein. Als Dosiereinheit kommen insbesondere Trichter, die vorzugsweise mit einer Fördereinheit, z.B. einer Schnecke, ausgerüstet sind. Druck und Scherkräfte können z.B. durch gegeneinander bewegliche Platten, Stempel, Rotoren, Scheiben, insbesondere konische Beanspruchungsscheiben oder Walzen, worunter Rotoren oder konische Beanspruchungsscheiben bevorzugt sind, aufgebaut werden. Im allgemeinen betragen die Umfangsgeschwindigkeiten der Rotoren oder konischen Beanspruchungsscheiben von 10 bis 120 m/s. Bevorzugte Umfangsgeschwindigkeiten sind von 20 bis 100 m/s, insbesondere 30 bis 80 m/s. Der Antrieb der beweglichen Teile kann sowohl elektrisch als auch hydraulisch erfolgen. In der Abnahmeeinheit wird die verdichtete Polyarylenethermasse zu den erfindungsgemäßen Polyarylenetheragglomeraten geformt. Dies geschieht vorzugsweise dadurch, daß die Polyarylenethermasse durch eine Lochmatrize gepreßt und mittels eines Messers abgetrennt wird. Um eine gleichmäßigere Verteilung der so erhaltenen zylinderförmigen unregelmäßig geformten Polyarylenetheragglomerate zu erhalten, können sich noch Siebe oder Sichter, bevorzugt Zick-Zack-Sichter anschließen. Ausgesiebtes Material kann beispielsweise wieder zur Dosiereinheit zurückgeführt werden. Besonders bevorzugt werden Plast-Agglomeratoren oder Scherwalzencompactoren verwendet.

Die Temperaturen, bei denen die Verdichtung vorgenommen wird, liegen oberhalb der Glasübergangstemperatur  $T_g$  des Polyarylenethers und betragen im allgemeinen mehr als  $250^\circ\text{C}$ . Die Verdichtung findet bei Temperatur unterhalb des Schmelzpunktes des jeweiligen Polyarylenethers statt und betragen meist nicht mehr als  $380^\circ\text{C}$ , insbesondere nicht mehr als  $360^\circ\text{C}$ . In der Regel sind Temperaturen von  $260^\circ\text{C}$  bis  $320^\circ\text{C}$  vorteilhaft.

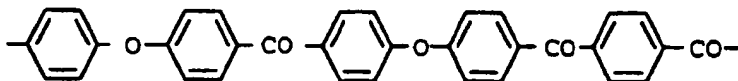
Die Form der Bohrung der Lochmatrize bestimmt neben der Frequenz mit der die durch die Lochmatrize gedrückte Masse abgeschnitten wird und dem verwendeten Sieb die Größe und Form der erhaltenen erfindungsgemäßen Polyarylenetheragglomerate.

Gemäß einer Ausführungsform können den Polyarylenetherflocken vor oder während des Agglomerierens Zusatzstoffe, Verarbeitungsmittel oder deren Mischungen zugesetzt werden. Als Zusatzstoffe kommen sowohl faser- als auch teilchenförmige Füllstoffe in Betracht. Als Beispiele seien Quarz, Wollastonit, Talkum, Glasfasern, Metallfasern, Carbonfasern oder Aramidfasern genannt. Zu den Verarbeitungshilfsmitteln zählen fluorierte Kohlenwasserstoffe wie Polytetrafluorethylen oder Metallseifen wie Metallstearate oder Metallpalmitate. Für manche Anwendungen kann es vorteilhaft sein, daß die erfindungsgemäßen Polyarylenetheragglomerate zusätzlich Stabilisatoren, bevorzugt Aluminosilikate wie Natriumaluminosilikat, enthalten, die während der Agglomeration zugesetzt werden.

Die erfindungsgemäßen Polyarylenetheragglomerate sind im allgemeinen unregelmäßig geformte Zylinder. Ihre Schnittdichte beträgt im allgemeinen 300 bis 700 g/l, bevorzugt 400 bis 600 g/l. Die erfindungsgemäßen Polyarylenetheragglomerate zeichnen sich durch ihre höhere Reinheit und geringeren Gelgehalt gegenüber Polyarylenethergranulat aus. Sie eignen sich zum Herstellen von Fasern, Folien oder Formkörpern. Beispielsweise können Profile und Halbzeuge hergestellt werden. Ebenso können z.B. Kabel beschichtet oder ummantelt werden.

#### Beispiele

Als Polyarylenether wurden jeweils Polyarylenetherketone aus Einheiten der Struktur II<sub>6</sub>



unterschiedlicher inhärenter Viskositäten und Schmelzvolumenindices eingesetzt. Die inhärente Viskosität ( $\eta_{inh}$ ) wurde jeweils bei  $25^\circ\text{C}$  anhand einer 0,5 gew.-%igen Lösung in 96 gew.-%iger Schwefelsäure gemessen. Der Schmelzvolumenindex (MVI) wurde bei einer Belastung von 10 kg bei  $420^\circ\text{C}$  und der

## EP 0 640 640 A1

angegebenen Standzeit bestimmt. Der Betrag der Differenz der Schmelzvolumenindices bei unterschiedlichen Standzeiten ( $\Delta$  MVI) ist ein Maß für die Schmelzstabilität der Polyarylenetherketone.

Die Polyarylenetherketone lagen jeweils als flockenförmiges unregelmäßiges Pulver einer mittleren Korngröße von 1,5 mm und einer Schüttdichte von 70 g/l vor.

- 5 Aus den Polyarylenetherketonflocken wurden erfindungsgemäße Agglomerate sowie Granulate zum Vergleich dargestellt. Die Flocken, Agglomerate sowie Granulate wurden durch 6-minütiges Verpressen bei 400 °C zu Pressplatten geformt. Der Gehalt von mit bloßem Auge sichtbaren schwarzen Punkten pro 48,3 cm<sup>2</sup> wurde als Maß für die Reinheit bzw. Schädigung der Polyarylenetherketone ermittelt.

- Die Flocken, Agglomerate und Granulate wurden außerdem mittels eines Einwellenextruders mit einem 10 Schneckendurchmesser von 45 mm und einem Länge/Durchmesser-Verhältnis von 25:1 und einer Drehzahl von 10/min extrudiert. Der jeweils erreichte Durchsatz wurde als Maß für die Verarbeitbarkeit bestimmt.

- Die Flocken wurden mittels eines Plastagglomerators (Plastcompactor PVF 250/40 der Firma Pallmann), der mit einer Dosiereinheit und einer Abnahmeeinheit bestehend aus einer Lochmatrize, einer Schneidmühle und einem Zick-Zack-Sichter sowie einer Rückföhrereinrichtung für ausgesiebtes Material ausgestattet war, 15 unter den angegebenen Bedingungen verdichtet. Der Durchmesser des Agglomeratorraumes betrug jeweils 250 mm. Die Matrizenlochung hatte einen Durchmesser von 3,2 mm und der Durchsatz während des Agglomerierens betrug jeweils 170 kg/h. Mittels eines Pyrometers wurde jeweils die Temperatur in der Lochmatrize gemessen.

### 20 Beispiel 1

Ausgangsmaterial:

25

Polyarylenetherketonflocken	$\eta_{inh} = 1,07$
Pressplatten:	hellbeige Gehalt an Punkten: 2 bis 5
Extrusion:	Durchsatz 2 kg/h

30

Agglomerationsbedingungen:

35

Temperatur in der Matrize:	345 °C
Schneidmühlensieb:	Durchmesser 10 mm

Produkteigenschaften des erhaltenen Agglomerates:

40

Schnittdichte:	520 g/l
Pressplatten:	hellbeige Gehalt an Punkten: 2 bis 5
Extrusion:	Durchsatz 5 kg/h

45

### Beispiel 2

50 Ausgangsmaterial:

55

Polyarylenetherketonflocken	$\eta_{inh} = 1,07$
Pressplatten:	hellbeige Gehalt an Punkten: 2 bis 5
Extrusion:	Durchsatz 2 kg/h

# EP 0 640 640 A1

Agglomerationsbedingungen:

5

Temperatur in der Matrice:	345 °C
Schneidmühlensieb:	Durchmesser 6 mm

Produkteigenschaften des Agglomerates:

10

Schnittdichte:	520 g/l
Pressplatten:	hellbeige Gehalt an Punkten: 4 bis 6
Extrusion:	Durchsatz 5 kg/h

15

Beispiel 3

20 Ausgangsmaterial:

25

Polyarylenetherketonflocken	$\eta_{inh} = 0,92$
Extrusion:	Durchsatz 2 kg/h

Agglomerationsbedingungen:

30

Temperatur in der Matrice:	300 °C
Schneidmühlensieb:	Durchmesser 10 mm

35

Produkteigenschaften des Agglomerates:

40

Schüttdichte:	520 g/l
Pressplatten:	hellbeige Gehalt an Punkten: 2 bis 5
Extrusion:	Durchsatz 5 kg/h
MVI <sub>4min</sub> =	104,9 cm <sup>3</sup>
MVI <sub>30min</sub> =	51,08 cm <sup>3</sup>
$\Delta$ MVI =	53,8 cm <sup>3</sup>

45

Beispiel 4

50 Ausgangsmaterial:

Polyarylenetherketonflocken wie unter Beispiel 3, jedoch wurde den Polyarylenetherketonflocken vor dem Agglomerieren 0,5 Gew.-% Natriumalumosilikat und 0,25 Gew.-% Polytetrafluorethylen-Pulver (jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht) zugesetzt.

55

Extrusion:	Durchsatz 2 kg/h
------------	------------------

Agglomerationsbedingungen:

Temperatur in der Matrice:	300 °C
Schneidmühlensieb:	Durchmesser 10 mm

Produkteigenschaften des Agglomerates:

Schüttdichte:	450 g/l
Pressplatten:	hellbeige Gehalt an Punkten: 3 bis 5
Extrusion:	Durchsatz 5 kg/h
MVI <sub>4min</sub> =	111,4 cm <sup>3</sup>
MVI <sub>30min</sub> =	81,25 cm <sup>3</sup>
Δ MVI =	31,15 cm <sup>3</sup>

Beispiel 5

Ausgangsmaterial:

Polyäthylenetherketonflocken	$\eta_{inh} = 0,90$
------------------------------	---------------------

Vor dem Agglomerieren wurde den Polyäthylenetherketonflocken 0,5 Gew.-% Natriumalumosilikat und 0,25 Gew.-% Polytetrafluorethylen-Pulver (jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht) zugesetzt.

Extrusion:	Durchsatz 2 kg/h
------------	------------------

Agglomerationsbedingungen:

Temperatur in der Matrice:	270 °C
Schneidmühlensieb:	Durchmesser 10 mm

Produkteigenschaften des Agglomerates:

Schüttdichte:	470 g/l
Pressplatten:	hellbeige Gehalt an Punkten: 3 bis 5
Extrusion:	Durchsatz 5,5 kg/h
MVI <sub>4min</sub> =	112,2 cm <sup>3</sup>
MVI <sub>30min</sub> =	82,77 cm <sup>3</sup>
Δ MVI =	29,43 cm <sup>3</sup>

## EP 0 640 640 A1

### Vergleichsbeispiel 1

Ausgangsmaterial:

5

Polyarylenetherketonflocken	$\eta_{inh} = 1,07$
Pressplatten:	hellbeige Gehalt an Punkten: 2 bis 5
Extrusion:	Durchsatz 2 kg/h

10

Granulierbedingungen:

15

Temperatur des Schmelzstranges:	396 °C
---------------------------------	--------

Produkteigenschaften des Granulates:

20

Schüttdichte:	800 g/l
Pressplatten:	hellbraun Gehalt an Punkten: 14 bis 19
Extrusion:	Durchsatz 6 kg/h

25

### Vergleichsbeispiel 2

30 Ausgangsmaterial:

Polyarylenetherketonflocken wie unter Beispiel 3, jedoch wurde den Polyarylenetherketonflocken vor dem Agglomerieren 0,5 Gew.-% Natriumalumosilikat und 0,25 Gew.-% Polytetrafluorethylen-Pulver (jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht) zugesetzt.

35

Granulierbedingungen:

40

Temperatur des Schmelzstranges:	394 °C
---------------------------------	--------

Produkteigenschaften des Granulates:

45

Schüttdichte:	810 kg/l
Pressplatten:	hellbraun Gehalt an Punkten: 10 bis 13
Extrusion:	Durchsatz: 6,5 kg/h
MVI <sub>4min</sub> =	110 cm <sup>3</sup>
MVI <sub>30min</sub> =	75,8 cm <sup>3</sup>
Δ MVI =	34,2 cm <sup>3</sup>

50

55



## Beispiel 6

Ausgangsmaterial:

5

Polyarylenetherketonflocken:	$\eta_{inh} = 0,93$
------------------------------	---------------------

Vor dem Agglomerieren wurde den Polyarylenetherketonflocken 0,5 Gew.-% Natriumalumosilikat und  
 10 0,25 Gew.-% Polytetrafluorethylen-Pulver (jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht) zugesetzt.

Extrusion:	Durchsatz 2 kg/h
------------	------------------

15

Agglomerationsbedingungen

20

Temperatur in der Matrice:	310°C
Schneidemühlensieb:	Durchmesser 10 mm

Produkteigenschaften des Agglomerates:

25

Schüttdichte:	500 g/l
Pressplatte:	hellbeige Gehalt an Punkten: 3 bis 5
Extrusion:	Durchsatz 5 kg/h
MVI <sub>4min</sub> =	120,8 cm <sup>3</sup>
MVI <sub>30min</sub> =	93,85 cm <sup>3</sup>
Δ MVI =	26,95 cm <sup>3</sup>

30

35

Vergleichsbeispiele

40

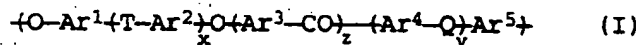
Die Polyarylenetherketonflocken wurden unter Verwendung eines gleichläufigen, kämmenden Zweischnellenextruders (Typ ZSK 53 der Firma Werner & Pfleiderer) unter Verwendung einer Vakuumentgasungseinheit für die Schmelze aufgeschmolzen und der Schmelzstrang nach dem Abkühlen granuliert. Die Temperatur des aus dem Düsenkopf austretenden Schmelzstrangs wurde mittels eines Pyrometers bestimmt.

## Patentansprüche

45

1. Polyarylenetheragglomerate erhältlich aus Polyarylenetherflocken oder Polyarylenetherpulvern durch Einwirken von Scherkräften unter Druck bei Temperaturen zwischen der Glasübergangstemperatur  $T_g$  und dem Schmelzpunkt  $T_m$  des jeweiligen Polyarylenethers.
- 50 2. Polyarylenetheragglomerate nach Anspruch 1, in denen die Polyarylenether sich wiederholende Einheiten der allgemeinen Formel I

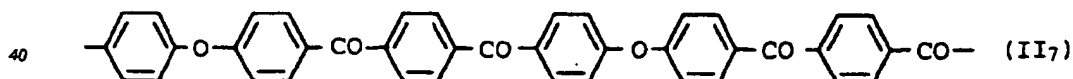
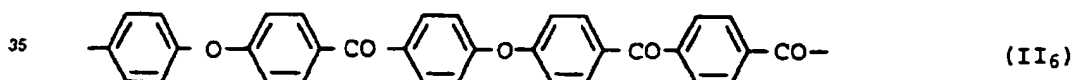
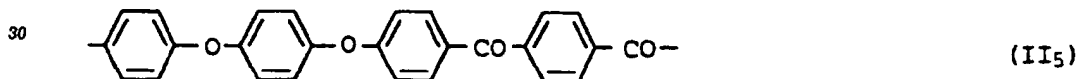
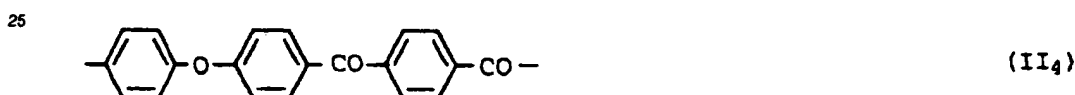
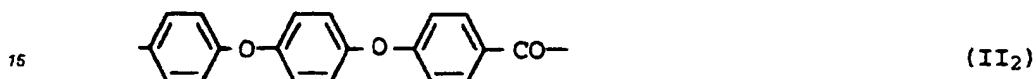
55



enthalten, in der  $\text{Ar}^1$  bis  $\text{Ar}^5$  gleich oder verschieden voneinander sein können und unabhängig von einander einen aromatischen Rest mit 6- bis 18 C-Atomen darstellen, T und Q gleich oder verschieden

voneinander sein können und unabhängig voneinander -O-, -S-, -SO<sub>2</sub>-, -CO- oder -COO- bedeuten können, x und y gleich oder verschieden voneinander sein können und unabhängig voneinander eine ganze Zahl von 0 bis 3 sein können und z 0 oder 1 sein kann.

- 5 3. Polyarylenetheragglomerate nach Anspruch 1 oder 2 in denen die Polyarylenether sich wiederholende Einheiten ausgewählt aus der Gruppe der Einheiten II



allein oder in Verbindung mit anderen Einheiten enthält.

- 45 4. Polyarylenetheragglomerate nach einem der Ansprüche 1 bis 3, erhältlich bei Temperaturen von 250 bis 380 °C.
- 50 5. Polyarylenetheragglomerate nach einem der Ansprüche 1 bis 4 mit einer Schüttdichte von 300 bis 700 g/l.
6. Verfahren zur Herstellung von Polyarylenetheragglomeraten, dadurch gekennzeichnet, daß man Polyarylenetherflocken durch Einwirken von Scherkräften unter Druck bei Temperaturen zwischen der Glasübergangstemperatur  $T_g$  und dem Schmelzpunkt  $T_m$  des jeweiligen Polyarylenethers verdichtet.
- 55 7. Verfahren nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß man den Polyarylenetherflocken vor oder während des Einwirkens der Scherkräfte Zusatzstoffe oder Verarbeitungshilfsmittel oder deren Mischungen zusetzt.

8. Verwendung der Polyarylenetheragglomerate gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5 zur Herstellung von Fasern, Filmen, Folien, Formkörpern oder Beschichtungen.
9. Fasern, Filme, Folien, Formkörper oder Beschichtungen hergestellt unter Verwendung der Polyarylenetheragglomerate gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5.

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55



Europäisches  
Patentamt

# EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung

EP 94 11 2799

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int.Cl.6)
X	EP-A-0 548 683 (BASF AG.) * Ansprüche 1,2 * * Spalte 2, Zeile 25 - Spalte 3, Zeile 28 * ---	1-4,6,8,9	C08G65/46 C08J3/12 C08J3/14
X	EP-A-0 548 684 (BASF AG.) * Seite 2, Zeile 18 - Zeile 47 * * ---	1-4,6,8,9	
A,D	KUNSTOFFBERATER, Nr.3, 1993 Seiten 28 - 31 FASS M. 'Neue perspektiven in der aufbereitung von kunststoffen' * ---	1-9	
A	WO-A-91 00876 (HEXCEL CORP.) * Ansprüche 1,4 * * ---	1,5	
A	WO-A-90 01510 (RAYCHEM CORP.) * Anspruch 1 * * -----	1	
			RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int.Cl.6)
			C08G C08J
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt			
Recherchenamt	Abschlußdatum der Recherche		Prüfer
DEN HAAG	2. Dezember 1994		O'Sullivan, T
KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE			
X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A : technologischer Hintergrund O : mündliche Offenbarung P : Zwischenliteratur		T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument L : aus anderen Gründen angeführtes Dokument ----- A : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übernehmendes Dokument	

EPO FORM L50 01.91 (P04C03)

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☒ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☐ **FADED TEXT OR DRAWING**

☒ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☒ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**